

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関  
国際事務局(43)国際公開日  
2004年4月15日 (15.04.2004)

PCT

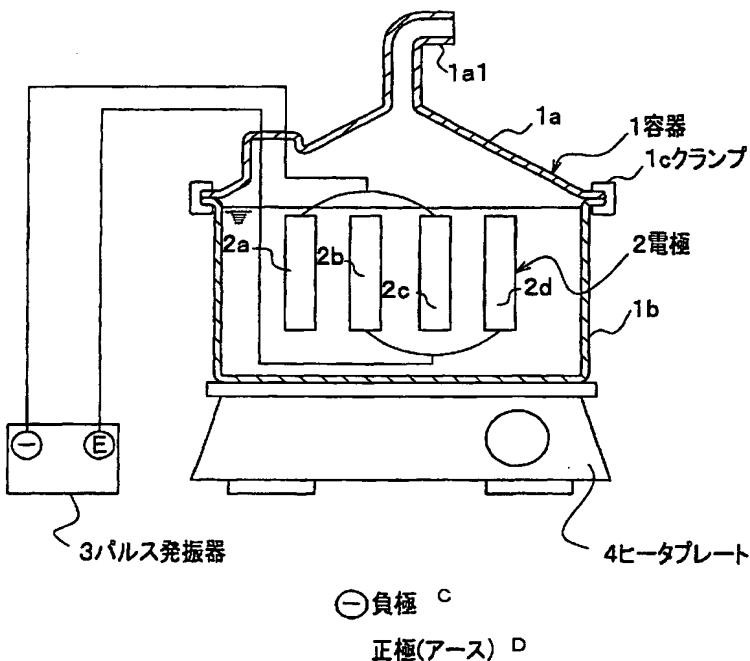
(10)国際公開番号  
WO 2004/031450 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C25B 1/06, C01B 3/02  
 (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/010065  
 (22) 国際出願日: 2003年8月7日 (07.08.2003)  
 (25) 国際出願の言語: 日本語  
 (26) 国際公開の言語: 日本語  
 (30) 優先権データ:  
     特願2002-284947 2002年9月30日 (30.09.2002) JP  
 (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 本田技研工業株式会社 (HONDA GIKEN KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒107-8556 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および  
 (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 北田正吉 (KITADA,Masayoshi) [JP/JP]; 〒351-0193 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 Saitama (JP). 廣田雅洋 (HIROTA,Masahiro) [JP/JP]; 〒351-0193 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 Saitama (JP). 仁木宏介 (NIKI,Kosuke) [JP/JP]; 〒351-0193 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 Saitama (JP).  
 (74) 代理人: 磯野道造 (ISONO,Michizo); 〒102-0093 東京都千代田区平河町2丁目7番4号 砂防会館別館内磯野国際特許商標事務所 気付 Tokyo (JP).  
 (81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI,

[続葉有]

(54) Title: HYDROGEN ACTIVATING APPARATUS

(54)発明の名称: 水素活性化装置



- 1...VESSEL  
 1c...CLAMP  
 2...ELECTRODE  
 3...PULSE OSCILLATOR  
 4...HEATING PLATE  
 C...NEGATIVE ELECTRODE  
 D...POSITIVE ELECTRODE (EARTH)

(57) Abstract: At least a pair of electrodes made of a semiconductor or a semiconductor compound is arranged in water or a hydrogen-containing organic compound liquid. A pulse power is applied to the electrodes, and a hydrogen gas is generated by activating hydrogen atoms in the water or hydrogen-containing organic compound liquid. A hydrogen activating apparatus having such a structure does not need an electrolyte that is added in the water to improve the electric conductivity, and can still produce hydrogen from a hydrogen atom-containing substance such as water or a hydrogen-containing organic compound using a small amount of energy.

(57) 要約: 半導体又は半導体化合物で構成される少なくとも1対の電極を、水中又は含水素有機化合物の液中に浸漬するように配置する。この少なくとも1対の電極間にパルス電力を印加し、前記水又は前記含水素有機化合物に含まれる水素原子を活性化して水素ガスを発生させる。このように構成した水素活性化装置は、水に電気伝導度を向上させるための電解質等を添加する必要が無く、しかも低エネルギーで水や含水素有機化合物等の水素原子を含む物質から水素を生成することができる。

WO 2004/031450 A1



NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

- (84) 指定国(広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ヨーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),

## 明細書

## 水素活性化装置

## 技術分野

5 本発明は、一般に、水素活性化装置に係り、特に、水中又は含水素有機化合物の液中に浸漬するように配置された少なくとも1対の電極間にパルス電力を印加することで水素を発生させるように構成した水素活性化装置に関する。

## 背景技術

10 近年、石油等の天然資源の枯渇化や二酸化炭素による地球温暖化の観点から石油に代わる代替燃料として、水素が注目されている。

今日このような水素の製造方法としては、工業用水素の90%は石油又は天然ガスから水蒸気改質法或は部分酸化法により製造されている。

これら以外の他の水素を製造する方法としては、石炭を原料とする方法(CO<sub>15</sub>法や発生炉ガス化法)、食塩電解槽からの副生水素の回収、水の電気分解法等が従来から行われてきている。

また、最近は熱化学製造法や太陽光を利用した水素製造方法も研究されている。

上述した水素製造方法以外の水素製造方法として、例えば水を熱分解して水素を製造する方法がある。この方法は最低でも1500°Cの反応温度が必要になり、

20 水の水素への分解率を上げるためにさらに4300°C程度の高温下で反応を行う必要があるのでエネルギー消費量が大きく、安価な電源がある場合は別として実用的ではない。

一方、ナトリウム、カリウム、マグネシウム等のアルカリ金属、又はアルカリ土類金属類を水に添加して、これらの金属と水とを化学反応させる方法が考えられるが、これらの金属は比較的高価であり、これら化学反応は激しい反応である  
25 ので工業的に利用するのは困難である。

また、水の電気分解法における水の代わりにメタノール等の炭化水素を用いて電気分解することも考えられる。炭化水素は、分子内の水素と炭素との結合エネルギーが比較的小小さく、それらの電気分解に必要とされる電位差は水の電気分解

よりも少なくて済むが、反応生成物としてCO, CO<sub>2</sub>等の副産物の生成を伴うためこれらを分離・除去する対策を講じる必要がある。

また、外部からエネルギーを与えることなしに、水や炭化水素における水素結合から水素を遊離させて水素を発生させることが可能な活性構造体に関する研究  
5 が本願発明者によって進められている。

水素を発生させる水素活性化装置として米国特許に開示された装置及び方法が  
知られている（例えば、米国特許第6126794号及び米国特許第64198  
15号参照）。この装置は、水が入った容器に少なくとも1対の電極を、電極間  
の距離を近接させた状態で水中に浸漬し、電極間にパルス電力を印加した場合に  
10 はオルト水素（燃焼熱はパラ水素よりも大）が、また、電極間にパルス電力を印  
加するのに加えて水中上部に設けたコイルにパルス電力を供給した場合には、パ  
ラ水素が生産できるように構成したものである。

この水素活性化装置は、入力電力が12V×300mA（低電圧×高電流）で  
あり、その原理は明らかにされていないが電極板の中間から酸素及び水素の気泡  
15 が発生する、つまり水が分解できると記載されている。

しかし、12V, 300mAのパルスでは、300mAの電流を電極板を介して通電した場合には電気分解と同様な電流による水の分解作用が生じる。すなわち電力消費量が大きくなる。

また、水を電気分解する場合には、その溶液の電気伝導度を向上させるべく水  
20 に電解質、例えばアルカリ金属塩（NaOH, KOH等）を添加し、電流密度をあげて電気分解することが一般的であり、薬剤のランニングコストがかかる。

そこで、電解質を添加しないで水を電気分解すると、水として超純水を使用した場合は水素の発生量が微量となるばかりかコスト高となり、水道水のような安価で無害な水を使用した場合は、電極の電流密度が高くとれないので水を効果的に利用することが難しい。

本発明は、前記課題を解決するためになされたものであって、水に電気伝導度を向上させるための電解質等を添加する必要が無く、しかも低エネルギーで水や含水素有機化合物等の水素原子を含む物質から水素を生成することができる水素活性化装置を提供することを目的とする。

## 発明の開示

本発明の一側面としての水素活性化装置は、水中又は含水素有機化合物の液中に浸漬するように配置され、かつ半導体又は半導体化合物で構成される少なくとも1対の電極間にパルス電力を印加し、前記水又は前記含水素有機化合物に含まれる水素原子を活性化して水素ガスを発生させるように構成したことを特徴とするものである。

このような構成を有する水素活性化装置によると、

- (1) 水中又は含水素有機化合物の液中に浸漬するように配置され、かつ半導体又は半導体化合物で構成される少なくとも1対の電極間にパルス電力を印加することで、パルス電力に由来する電磁波のエネルギーが磁極を有する水素原子に吸収され、容易に水素原子を活性化することができる。その結果、水又は含水素有機化合物から容易に水素原子が脱離して水素（分子）を生成することができる。
- (2) 電子の供給には直接関係しないパルス電力を印加することによって一般の水道水や蒸留水又は含水素有機化合物でも容易に水素原子を活性化分解することが可能になり、しかも環境を汚染せず、かつ低エネルギーでこれを実施することができる。

従って、電気伝導度を向上させるための電解質等を添加する必要が無く、しかも低エネルギーで水や含水素有機化合物等の水素原子を含む物質から水素を生成することができる水素活性化装置を提供することができる。

尚、ここで言う電子の供給に直接関与しないパルス電力とは、高電圧×低電流（零ではないが殆ど電流の流れない）のパルス電力を意味する。従来、水や含水素有機化合物の電気分解で水素を得る方法では、電極の電流密度を高くする必要があり、低電圧×高電流の操作条件が必要であったが、本発明では電流の流れ難い半導体材料を電極に用い、1対の電極毎に高電圧×低電流のパルス電力を印加している。

上述の水素活性化装置は、前記電極を構成する前記半導体又は前記半導体化合物が、シリコン、ゲルマニウム、ガリウム、燐、ヒ素、カドミウム、硫黄、セレンのうちの少なくとも1種類の元素を含むことが望ましい。

前記の元素を少なくとも1種類含む前記半導体又は前記半導体化合物によって

前記電極を構成することによって、導体材料よりも電極の消耗が少なく、しかも従来の水の電気分解法よりも低エネルギーで水素を発生させることができる。尚、ここでいう半導体の元素は、100%純度の元素ではなく微量の不純物を含む元素をいう。

- 5 また、上述の水素活性化装置は、前記電極の形状がプレート又は円筒であることを特徴とするものが好ましい。

前記電極の形状をプレート又は円筒とすることにより、従来、水の電気分解法では電極の電流密度を大きくする必要があり、電極の表面積を多孔板、金網等複雑な形状にする必要があるため電極の製造コストが高価であったが、本発明では  
10 電流密度が小さくてもよいため電極の形状を簡素化することができ、電極の製造コストが安価になる。

さらに、前記水素活性化装置は、前記電極間に前記パルス電力を所定時間印加したら装置を停止し、前記電極を形成する正極の電極材料と負極の電極材料を互いに交換した後、改めて前記パルス電力を印加できるように構成したことを特徴  
15 とするものが好ましい。

このように構成された水素活性化装置は、電極材料の系外への損失がない状態で水を分解することができる。すなわち、パルス電力を所定時間電極に印加すると負極側の電極材料が液中に溶出し、正極側（アース側）の電極に析出する。そこで、正極側（アース側）の電極材料を負極側の電極材料とし、最初負極側であった電極材料を正極側（アース側）の電極材料として再びパルス電力を電極間に印加すれば、電極材料の系外への損失がない状態で水を分解することができる。  
20

#### 図面の簡単な説明

- 第1図は、本発明に係る一実施形態の水素活性化装置全体の構成図である。  
25 第2図は、本発明に係る一実施形態の水素活性化装置の電極に印加したパルスの波形特性を示す図である。

第3図（a）は、本発明に係る水素活性化装置を使用して水からガスを発生させたときのガスの発生量の経時変化を示す図であり、第3図（b）は、第3図（a）をグラフ化した図、第3図（c）は、第3図（a）をガス組成の経時変化に直し

た図である。

### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態について第1図～第3図を参照して説明する。

5 最初に、本発明に係る一実施形態の水素活性化装置について第1図を参照して説明する。尚、本実施形態では、水素活性化装置を水から水素を生成するのに適用した場合について説明する。

本発明に係る水素活性化装置は、第1図に示すように、

水を所定量充満した容器1と、

10 前記水の中に浸漬された状態で固定される4枚のプレート状のシリコンから形成される電極2と、

前記電極2にパルス電力を供給するパルス発振器3と

前記容器1内の水を加熱するためのヒータプレート4と、

から主要部が構成される。

15 容器1は、円錐状の容器上部1aと円筒状の容器底部1bとから形成される。

尚、円錐状の容器上部1aの最上部には、容器1内で発生したガスを、図示しない後段で水上置換法により捕集する設備へ導入するための配管1a1が設けられている。

20 容器1の材質は、内部が目で見えるように本実施形態ではガラスを使用している。容器底部1bの上に容器上部1aが図示しないOリングを介して載置され、クランプ1cで容器上部1aのフランジ部と容器下部1bのフランジ部とを挟むことで一体化している。

電極2は、水の中に浸漬された状態で固定された4枚の電極2a～2dからなり、それぞれが同じ大きさの矩形のプレート状のシリコンから形成されている。

25 電極2は、後述するパルス発振器3から負の電圧がかかる2枚の電極2a, 2cと正極(アース)と連結する2枚の電極2b, 2dとに分けて使用される。

また、正極とアースとは結線されているため、正極の電位は常に零ボルトである。

尚、本実施形態では2対の電極2a～2dを使用しているが、必要な水素量を

確保するのに見合った枚数に適宜変更できる。電極の枚数は、2枚単位で変更できる。また、電極の形状として矩形のプレートを使用しているが、円筒の電極も使用できる。

5 このように電極の形状をプレートとすることにより、従来、水の電気分解法では電極の電流密度を大きくする必要があり、電極の表面積を多孔板、金網等複雑な形状にする必要があるため電極の製造コストが高価であったが、本発明では電流密度が小さくてもよいため電極の形状を簡素化することができ、電極の製造コストが安価になる。

尚、電極面は発生ガスの脱離が容易となる平坦な面が好ましい。従来、電極の表面積、すなわち電流密度を大きくするために使用されてきた溝付きの電極、金網の電極、多孔質板の電極、フィン付き電極、よろい戸電極、多孔板電極も使用できるが電極面が平坦でないため発生ガスの上方への抜けが悪くなる。この場合は強制流によって気泡の離脱を促すための装置が必要となる。

10 電極を構成する材料として、本実施形態では半導体のシリコンを使用しているが、シリコン、ゲルマニウム、ガリウム、燐、ヒ素、カドミウム、硫黄、セレンのうちの少なくとも1種類の元素を含んだ半導体又は半導体化合物であればどれでも電極材料として使用できる。

15 前記電極を構成する材料を半導体のシリコンとしたことにより、導体材料よりも電極の消耗が少なく、しかも従来の水の電気分解法よりも低エネルギーで水素を発生させることができる。

20 パルス発振器3は、前記2対の電極2a～2d間にパルス電力を供給するためのものである。パルス発振器3のパルス電力発生回路についてここで簡単に説明する。

25 本発明の構成要素であるパルス発振器3のパルス電力発生回路は、通常使用されている周知のものであり、例えば商用周波数電源の周波数50Hzを400Hzに変換する周波数変換回路と、この変換された周波数400Hzの電力を入力し、出力に高電圧を得るトランスを有する昇圧回路と、この昇圧された電力を三角波形に成形するパルス波形成形回路とより構成される。

このように構成されるパルス発振機3のパルス電力発生回路は、最初に、交流

電源 100V の周波数を 50Hz から 400Hz まで上げる。周波数を 400Hz まで上げるのは後段の昇圧回路のトランスを小さくするためである。

次に、この変換された周波数 400Hz の電力を昇圧回路に有するトランスの一次側に入力し、二次側から高電圧（例えば 1500V）を出力する。

5 さらにこの昇圧された電力をパルス波形成形回路に入力し、波形が三角形の波の出力信号を、容器 1 内の水に浸漬して配設されたシリコンの電極間に印加する。

このようにしてシリコンの電極間に印加されるパルス電力のパルスの波形特性について第 2 図を参照してもう少し詳しく説明する。

シリコンの電極間に印加されるパルス電力のパルスの波形特性は、第 2 図に示すように、シリコンの電極間に印加した電圧は 1500V の負電圧、電流値は 1mA～5mA である。すなわち、高電圧×低電流のパルス電力である。

また、パルスの波形は三角形であり、三角形のピーク間のインターバルは 1/400sec であった。

ヒータプレート 4 は、容器 1 内の水を加熱するための電気式加熱器であり、プレートの上に所定量水の入った容器 1 をのせて容器内の水を下から加熱して 95℃ まで加熱するためのものである。加熱することで電極間に印加するパルス電力との相乗効果により、水の水素原子をより活性化することができる。

次に、電極間の水に所定のパルス電力を印加した時に水素原子が活性化される原理について、本発明者等は以下の原理ではないかと推察している。

20 以下、この原理について説明する。

水素原子の原子核（正電荷）の周りには、1 個の電子（負電荷）が自転しながら公転している。そのため核と電子の間には、ケーロン力や遠心力が働いており、これらの力がバランスした原子空間を形成している。

半導体であるシリコンの電極間の水にパルス電力を印加すると、パルス電力に由来する電磁波のエネルギーが磁極を有する水素原子に吸収され、水素原子が励起状態となる。

このため、水の水素原子と酸素原子は水素結合をしているが、水素原子と酸素原子の原子間同士の結合が弱くなつて切断され、その結果として水素原子が酸素原子から脱離し、水素原子同士が結合して水素（分子）が得られたものと考えて

いる。

次に、第1図及び第3図を参照して本発明に係る一実施形態の水素活性化装置を利用して水を分解したときの実施例について詳細に説明する。

### 1. 水素活性化装置の構成

- 5 (a) 容器；透明なガラス製。水の容量として400mL充填できるもの。  
(b) 電極；矩形のプレート状のシリコン；20W×50L×0.5t×4枚。  
各電極間の距離は1mmとする。  
(c) ヒータプレート；容器内の水を95°C～98°Cに加熱できる容量。  
(d) パルス発振器；-4.5V×1.1mA。

10 尚、シリコンの電極2a～2dとパルス発振器3とを結線する結線材料として使用した銅線は、銅線とシリコンとが反応するのを防止するため、接着剤でコーティングする方法で結線した。また、容器1から発生した気体は水上置換法で捕集し、捕集したガスはガスクロマトグラフィーで分析した。

15 次に、この水素活性化装置を使用して実際に水素を発生させたときの運転方法について説明する。

- (1) 第1図に示すような容器1の中に4枚のシリコンの電極2a～2dを固定する。  
(2) 銅線でパルス発振器3と4枚のシリコンの電極2a～2dとを結線する場合、パルス発振器3の負極と電極2a, 2cが、またパルス発振器3の正極（アース）と電極2b, 2dがそれぞれ結線される。  
20 (3) 次に、4枚のシリコンの電極2a～2dの上端が水面下に浸漬するまで容器1に水を入れる。  
(4) ヒータプレート4に容器1を載せて容器1内の水を95°Cまで加熱する。  
(5) 発生してくるガスを捕集してガスの発生量を調べるために、図示しない水上置換設備を後段に設ける。  
25 (6) パルス発振器3の電源スイッチON。パルス発振器3からシリコンの電極2a～2dにパルス電力を6時間入力する。6時間パルス電力を入力したらパルス発振器3の電源スイッチOFF。

このように水素活性化装置を運転したときのガス発生量の経時変化を第3図

(a)、第3図(a)をグラフ化したものを第3図(b)、第3図(a)の経時変化をガス組成の経時変化に直したもの第3図(c)に示す。

第3図(a)、第3図(b)からも分かるように、パルス電力を、印加開始後6時間シリコンの電極間に印加すると、水中の水素原子が活性化され時間と共に酸素原子から分離されて水素が生成されてくることが分かる。  
5

尚、窒素、酸素の発生量は、時間と共に増加はするが、第3図(c)に示すように、水素の発生量と比較してはるかに少なかった。すなわち、水素原子を選択的に活性化していることが分かる。

また、負極側から水素が生成し、正極側(アース側)にシリコンの析出が見られたが所定時間、例えばシリコンの電極の消耗量が多く(例えば10%)なったたら、正極と負極の電極材料を互いに交換することにより、系内のシリコンを系外へ損失させることなく、水を分解することができた。  
10

また、正極と負極の電極材料を交換することなく水を分解した場合には、約30時間で水素の発生が観測されなくなるのに対し、正極と負極の電極材料を交換15して水を分解していくと、約100時間経過した後でも水素の発生が観測された。

尚、正極(アース)へのシリコンの析出の有無は、パルス電力を印加開始後、所定時間経過した正極(アース)のサンプル片をそれぞれX線マイクロアナライザー付きの走査型電子顕微鏡(SEM)にて観察し確認した。

このような構成と作用を有する一実施形態の水素活性化装置によれば、電極に半導体材料のシリコンを使用し、従来とは異なり高電圧×低電流のパルス電力を印加することにより、  
20

(1) 水の電気分解ではなく水素原子のみを選択的に活性化することができ、しかも低エネルギーで好適に水素を生成することができた。

(2) 高電圧×低電流のパルス電力を電極に印加すると、正極側(アース側)にシリコンが析出するが、所定時間経過したら正極(アース)の電極材料を負極の電極材料とし、負極の電極材料を正極(アース)の電極材料とすることにより、シリコンの系外への損失を防止することができた。  
25

以上、一実施形態の水素活性化装置について説明したが、本発明に係る水素活性化装置はこれに限定されるものでなく、本発明の技術的範囲を逸脱しない範囲

で適宜変更して実施可能である。

例えば、パルス発振器から発生されるパルス電力の波形は、パルス電力が負の高電圧×低電流であれば三角形以外の波形であっても良い。

- シリコンの系外への損失を防止する方法として、正極(アース)と負極の電極材料の交換をするのではなく、電子回路により電極の極性を交換するようにしても良い。

以上の構成と作用からなる本発明によれば、電気伝導度を向上させるための電解質等を添加する必要が無く、しかも低エネルギーで水や含水素有機化合物等の水素原子を含む物質から水素を生成することができる水素活性化装置を提供することができる。

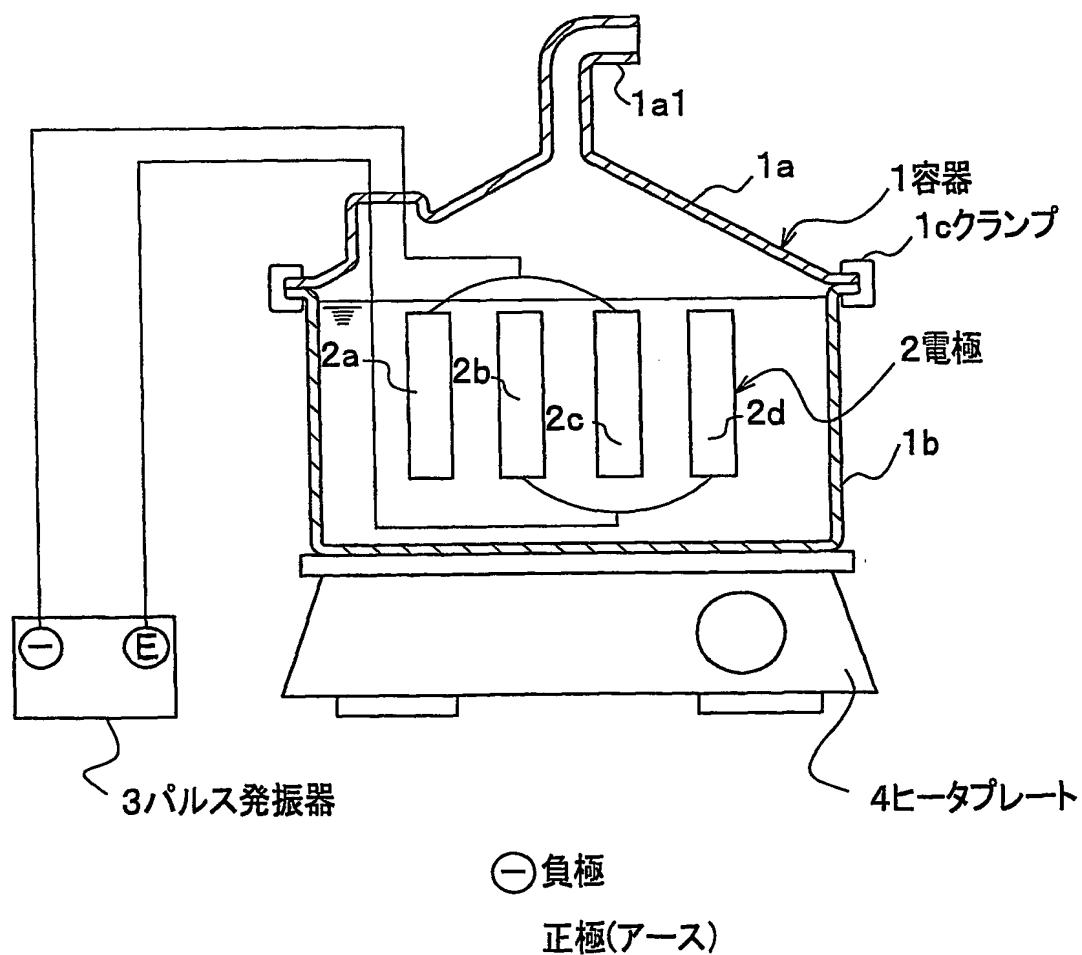
#### 産業上の利用可能性

本発明の水素活性化装置によって、簡単な設備構成によりエネルギー効率の高い方法で安価に製造することが可能となる水素は、化石燃料に代わる燃料電池燃料等として、あらゆる産業分野での利用が見込まれる。

### 請求の範囲

1. 水中又は含水素有機化合物の液中に浸漬するように配置され、かつ半導体又は半導体化合物で構成される少なくとも 1 対の電極間にパルス電力を印加し、前記水又は前記含水素有機化合物に含まれる水素原子を活性化して水素ガスを発生させるように構成したことを特徴とする水素活性化装置。  
5
2. 前記電極を構成する前記半導体又は前記半導体化合物が、シリコン、ゲルマニウム、ガリウム、磷、ヒ素、カドミウム、硫黄、セレンのうちの少なくとも 1 種類の元素を含むことを特徴とする請求の範囲第 1 項に記載の水素活性化装置。  
10
3. 前記電極の形状がプレート又は円筒であることを特徴とする請求の範囲第 1 項に記載の水素活性化装置。
4. 前記電極間に前記パルス電力を所定時間印加したら装置を停止し、前記電極を形成する正極の電極材料と負極の電極材料を互いに交換した後、改めて前記パルス電力を印加できるように構成したことを特徴とする請求の範囲第 1 項から第 3 項のうちの何れか 1 項に記載の水素活性化装置。  
15

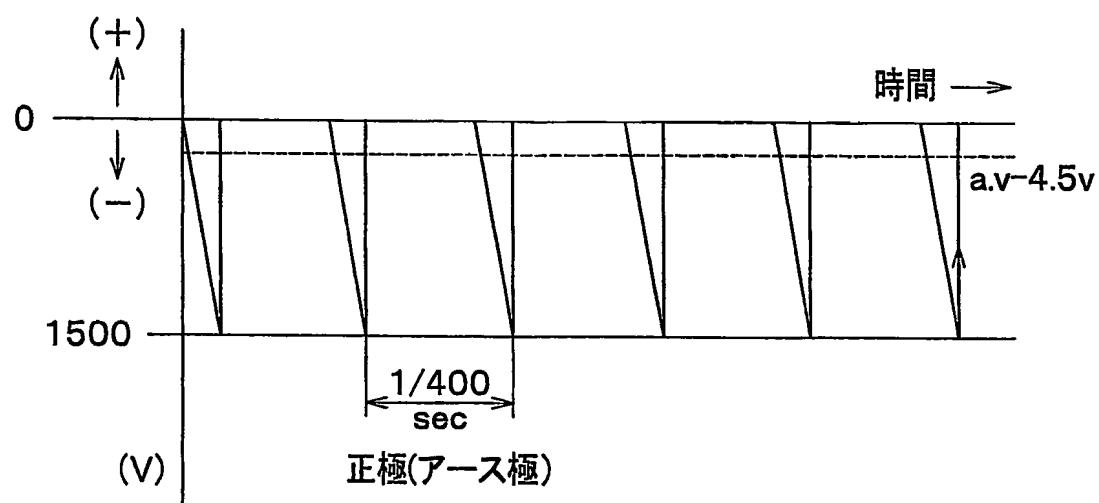
第1図



①負極

正極(アース)

第2図



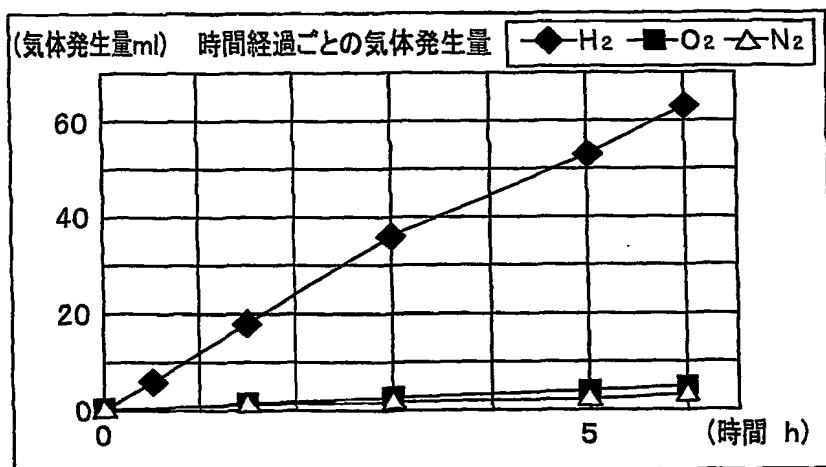
## 第3図

(a)

時間(h)	0	0.5	1.5	3.0	5.0	6.0
H <sub>2</sub> (ml)	0	6.38	18.70	36.60	53.04	63.51
O <sub>2</sub> (ml)	0	0.54	1.45	2.79	4.10	4.98
N <sub>2</sub> (ml)	0	0.58	1.36	2.12	2.70	3.34
合計(ml)	0	7.50	21.51	41.51	59.84	71.83

(4.5V,1.1mA時) デジタルマルチメーターにて測定

(b)



(c)

時間(h)	0	0.5	1.5	3.0	5.0	6.0
H <sub>2</sub> (VOL%)	0	85.07	86.94	88.17	88.64	88.42
O <sub>2</sub> (VOL%)	0	7.20	6.74	6.72	6.85	6.93
N <sub>2</sub> (VOL%)	0	7.73	6.32	5.11	4.51	4.65
合計(VOL%)	-	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

(4.5V,1.1mA時)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/10065

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C25B1/06, C01B3/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C25B1/06, C01B3/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 9-071886 A (Mikio SUGISAKI), 18 March, 1997 (18.03.97), Claim 1; Par. No. [0002] (Family: none)	1-4
Y	JP 11-012773 A (Takuma ABE), 19 January, 1999 (19.01.99), Claim 1; Par. No. [0029] (Family: none)	1-4
Y	WO 98/42893 A1 (WHATMAN INC.), 01 October, 1998 (01.10.98), Full text & US 5840172 A & EP 975822 A1 & JP 2000-510531 A	1-4

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
10 November, 2003 (10.11.03)

Date of mailing of the international search report  
25 November, 2003 (25.11.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/10065

## C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 33736/1987 (Laid-open No. 143572/1988) (Kabushiki Kaisha Esutekku), 21 September, 1988 (21.09.88), (Family: none)	1-4
Y	JP 2001-286866 A (Takaaki MAEKAWA), 16 October, 2001 (16.10.01), Claim 1; Par. No. [0013] (Family: none)	1-4
Y	JP 11-077049 A (The Japan Carlit Co., Ltd.), 23 March, 1999 (23.03.99), Claim 3; Par. No. [0019] (Family: none)	1-4
Y	JP 51-046581 A (Nippon Dento Kogyo Kabushiki Kaisha), 21 April, 1976 (21.04.76), Page 4, upper right column, line 16 to lower right column, line 10 (Family: none)	1-4
Y	JP 50-131092 A (The Furukawa Electric Co., Ltd.), 16 October, 1975 (16.10.75), Claims; page 1, lower right column, lines 3 to 5 (Family: none)	1-4
Y	US 4113601 A (Ernst Spirig), 12 September, 1978 (12.09.78), Full text & DE 2754668 A & JP 53-104576 A	3
Y	JP 2000-160383 A (Yugen Kaisha Techno Custom), 13 June, 2000 (13.06.00), Claim 3 (Family: none)	4

## A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int.Cl' C25B1/06, C01B3/02

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int.Cl' C25B1/06, C01B3/02

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2003年
日本国登録実用新案公報	1994-2003年
日本国実用新案登録公報	1996-2003年

## 国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 9-071886 A (杉崎 幹雄) 1997. 03. 1 8、請求項1、【0002】(ファミリーなし)	1-4
Y	J P 11-012773 A (阿部 拓磨) 1999. 01. 1 9、請求項1、【0029】(ファミリーなし)	1-4
Y	WO 98/42893 A1 (WHATMAN INC.) 1998. 10. 01、全文 & US 5840172 A & EP 9758 22 A1 & JP 2000-510531 A	1-4

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

10. 11. 03

## 国際調査報告の発送日

25. 11. 03

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官(権限のある職員)

加藤 浩一

4 E 8617



電話番号 03-3581-1101 内線 3423

C(続き)	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	日本国実用新案登録出願62-33736号(日本国実用新案登録出願公開63-143572号)の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム(株式会社エステツク) 1988.09.21(ファミリーなし)	1-4
Y	JP 2001-286866 A (前川 孝昭) 2001. 10. 16、請求項1、【0013】(ファミリーなし)	1-4
Y	JP 11-077049 A (日本カーリット株式会社) 1999. 03. 23、請求項3、【0019】(ファミリーなし)	1-4
Y	JP 51-046581 A (日本電鍍工業株式会社) 1976. 04. 21、第4頁右上欄第16行—右下欄第10行(ファミリーなし)	1-4
Y	JP 50-131092 A (古河電気工業株式会社) 1975. 10. 16、特許請求の範囲、第1頁右下欄第3-5行(ファミリーなし)	1-4
Y	US 4113601 A (Ernst Spirig) 1978. 09. 12、全文 & DE 2754668 A & JP 53-104576 A	3
Y	JP 2000-160383 A (有限会社テクノカスタム) 2000. 06. 13、請求項3(ファミリーなし)	4